

## SIFAT FISIS FILM TIPIS $\text{TiO}_2\text{-Co}$ YANG DITUMBUHKAN DENGAN TEKNIK MOCVD

Horasdia Saragih<sup>1,2</sup>, Ridwan<sup>3</sup>, Mujamilah<sup>3</sup>, Pepen Arifin<sup>1</sup> dan Mohamad Barmawi<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Departemen Fisika, FMIPA - ITB

Jl. Ganesha No. 10, Bandung

<sup>2</sup>Jurusan Fisika, Universitas Pattimura  
Ambon

<sup>3</sup>Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - BATAN  
Kawasan Puspiptek Serpong 15314, Tangerang

### ABSTRAK

**SIFAT FISIS FILM TIPIS  $\text{TiO}_2\text{-Co}$  YANG DITUMBUHKAN DENGAN TEKNIK MOCVD.** Film tipis  $\text{TiO}_2\text{-Co}$  telah berhasil ditumbuhkan dengan teknik MOCVD dengan menggunakan prekursor titanium (IV) isopropoxide  $[\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4]$  99,99% dan serbuk tris (2,2,6,6-tetramethyl-3, 5-heptanedionato) cobalt (III)  $[\text{Co}(\text{TMHD})_3]$  99%. Parameter penumbuhan, seperti: suhu bubbler  $\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$  50°C, suhu substrat 450°C, tekanan bubbler  $\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$  260 Torr, laju aliran gas argon ke bubbler  $\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$  100 sccm, laju aliran gas  $\text{O}_2$  60 sccm dan tekanan total penumbuhan 2 Torr, ditemukan menjadi parameter penumbuhan yang paling optimal. Struktur kristal film sangat dipengaruhi oleh kehadiran dan konsentrasi atom Co. Ukuran butiran dan kekasaran permukaan film bertambah dengan bertambahnya kandungan Co. Kemampuan larut (*solubility*) atom Co ke dalam matrik kisi  $\text{TiO}_2$  teramati mulai bersaturasi pada kandungan Co sekitar 12%. Film tipis  $\text{TiO}_2\text{-Co}$  menunjukkan sifat feromagnetisme pada suhu ruang. Kehadiran elemen magnetik Co tidak menghilangkan karakteristik semikonduktif  $\text{TiO}_2$ . Namun, resistansi film bertambah dengan bertambahnya kandungan Co.

**Kata kunci:** Film tipis,  $\text{TiO}_2\text{-Co}$ , semikonduktor feromagnetik, Metal Organic Chemical Vapor Deposition (MOCVD)

### ABSTRACT

**PHYSICAL PROPERTIES OF  $\text{TiO}_2\text{-Co}$  THIN FILMS GROWN BY MOCVD TECHNIQUE.**  $\text{TiO}_2\text{-Co}$  thin films have been grown by MOCVD technique using titanium (IV) isopropoxide  $[\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4]$  99,99% and tris (2,2,6,6-tetramethyl-3, 5-heptanedionato) cobalt (III)  $[\text{Co}(\text{TMHD})_3]$  99% precursors. The growth parameters, such as:  $\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$  bubbler temperature of 50°C, substrate temperature of 450°C,  $\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$  bubbler pressure of 260 Torr, argon gas flow rate through  $\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$  bubbler of 100 sccm,  $\text{O}_2$  gas flow rate of 60 sccm, and total pressure of 2 Torr were found to be optimal parameters. The crystal structure of thin films was depends to Co atom concentration. The grain size, surface roughness and resistivity of films increase with increasing of Co content. Solubility of Co atoms in  $\text{TiO}_2$  crystal matrix was observed occurs at about of 12%. The films were shown the ferromagnetic and semiconductive properties at room temperature.

**Key words:** Thin films,  $\text{TiO}_2\text{:Co}$ , ferromagnetic semiconductors, MOCVD

### PENDAHULUAN

Persoalan utama dalam pengembangan divais *spin*-elektronik (spintronik) saat ini adalah meningkatkan efisiensi injeksi arus *spin* dari bahan magnetik ke dalam bahan semikonduktor pada divais persambungan dari kedua bahan tersebut pada suhu ruang [1-2]. Efisiensi injeksi optimum dicapai apabila konduktivitas bahan magnetik sama nilainya dengan konduktivitas bahan semikonduktor. Oleh karenanya, suatu cara yang mungkin dilakukan adalah dengan menggunakan bahan semikonduktor magnetik sebagai sumber arus *spin*[3].

Semikonduktor magnetik dapat diperoleh dengan mendadah bahan semikonduktor konvensional dengan suatu elemen magnetik[3]. Elemen magnetik disubstitusi ke dalam matriks kisi semikonduktor. Sejauh ini yang intensif diinvestigasi adalah material GaAs yang didadah dengan elemen magnetik Mn (GaAs:Mn) [4]. Sifat feromagnetik dimiliki sampai pada suhu maksimum ( $T_c$ ) 110°K.

Karena nilai  $T_c$  semikonduktor magnetik  $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$  masih sangat jauh dari harapan praktis, suatu pencarian terhadap jenis material feromagnetik

semikonduktor baru terus dilakukan [5]. Untuk tujuan tersebut semikonduktor oksida, yang berperan sebagai material induk, menjadi salah satu pilihan yang diharapkan, dan satu di antaranya adalah material  $\text{TiO}_2$  [6].

Telah ditumbuhkan film tipis semikonduktor oksida  $\text{TiO}_2$  yang didadah dengan elemen Co ( $\text{TiO}_2\text{-Co}$ ), dan hasilnya menunjukkan suatu gejala feromagnetisme pada suhu ruang [7]. Suatu penemuan yang memberikan arti penting yang sangat signifikan dalam pengembangan spintronik. Saat ini, usaha penginvestigasian terhadap proses pengolahan dan sifat fisis material ini menjadi intensif dilakukan untuk mendapatkan suatu karakteristik optimal yang diharapkan dapat memenuhi kebutuhan aplikasi praktis [8].

Sifat fisis film tipis  $\text{TiO}_2\text{-Co}$  sangat dipengaruhi oleh teknik dan kondisi penumbuhan. Film tipis  $\text{TiO}_2\text{-Co}$  yang ditumbuhkan dengan metode *pulsed laser deposition* (PLD) [6-7] pada tekanan parsial oksigen yang tinggi ( $P_{\text{O}_2} > 10^{-6}$  Torr) tidak menunjukkan efek Hall anomali. Sementara penumbuhan pada tekanan parsial oksigen yang lebih rendah menghasilkan kekosongan oksigen yang tinggi yang menyebabkan penambahan resistivitas. Penumbuhan dengan metode *molecular beam epitaxy* (MBE) [9] menghasilkan kluster-kluster logam Co yang berukuran beberapa puluh nanometer yang menghasilkan pulau-pulau berkonduktivitas tinggi. Film tipis  $\text{TiO}_2\text{-Co}$  dengan kualitas baik masih belum dihasilkan. Oleh karena itu pencarian teknik dan kondisi penumbuhan optimum yang dapat menghasilkan film tipis  $\text{TiO}_2\text{-Co}$  dengan kualitas baik menjadi pusat perhatian.

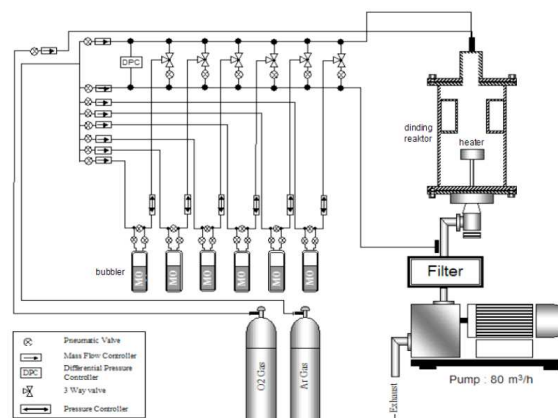
Di dalam makalah ini, sifat fisis film tipis  $\text{TiO}_2\text{-Co}$  yang ditumbuhkan dengan teknik *metal organic chemical vapor deposition* (MOCVD) akan diterangkan termasuk kondisi penumbuhan optimumnya.

## METODE PERCOBAAN

Suatu sistim peralatan reaktor penumbuhan film tipis yang menggunakan sumber metalorganik yang disebut sebagai reaktor MOCVD, dibangun. Skema diagramnya ditunjukkan pada Gambar 1. Film tipis  $\text{TiO}_2\text{-Co}$  ditumbuhkan di atas substrat Si(100). Prekursor metalorganik yang digunakan adalah *titanium (IV) isopropoxide* [ $\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$ ] 99,99% dalam bentuk cair (*Sigma Aldrich Chemical Co., Inc.*) dan serbuk *tris* (2,2,6,6-tetramethyl-3, 5-heptanedionato) cobalt (III), 99%,  $\text{Co}(\text{TMHD})_3$  (*Strem Chemical, Inc.*) serta gas oksigen sebagai sumber O. Serbuk  $\text{Co}(\text{TMHD})_3$  dilarutkan ke dalam pelarut *tetrahydrofuran* (THF,  $\text{C}_4\text{H}_8\text{O}$ ) dengan konsentrasi 0,2 mol per liter. Hasil larutan, dan bahan cair  $\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$  dimasukkan ke dalam masing-masing *bubbler* yang telah terhubung dengan suatu sistem perpipaan ke ruang penumbuhan. *Bubbler* dipanaskan untuk menghasilkan uap bahan. Uap masing-masing bahan dialirkan ke ruang penumbuhan

dengan gas argon (Ar) sebagai pembawa. Tekanan uap di dalam *bubbler* dikendalikan dengan suatu katup pengendali. Tekanan awal ruang penumbuhan adalah  $1 \times 10^{-3}$  Torr. Gas  $\text{O}_2$  dialirkan ke dalam ruang penumbuhan saat penumbuhan film dilakukan.

Pengujian *Energy Dispersive Spectroscopy* (EDS) (Jeol JSM 6360LA) dilakukan untuk mengetahui komposisi persentasi atom penyusun film. Struktur kristal film ditentukan dari hasil pola *X-ray Diffraction* (XRD) yang menggunakan radiasi  $\text{Cu K}_\alpha$  ( $\lambda = 1,54056 \text{ \AA}$ ) (Philips PW3710). Ketebalan dan morfologi permukaan film dianalisis dari hasil potret *Scanning Electron Microscope* (SEM) (Jeol JSM 6360LA). Sifat magnetik film diuji dengan suatu sistem *Vibrating Sample Magnetometer* (VSM) (Oxford). Karakteristik transpor listrik film ditentukan dari hasil pengukuran Hall dengan metode empat titik *Van Der Pauw*.



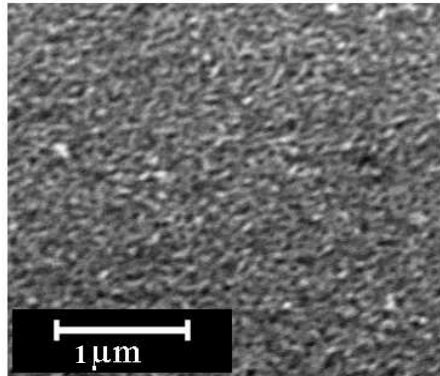
Gambar 1. Skema sistim reaktor MOCVD yang digunakan dalam menumbuhkan film tipis  $\text{TiO}_2\text{-Co}$ . (MO = metalorganik).

## HASIL DAN PEMBAHASAN

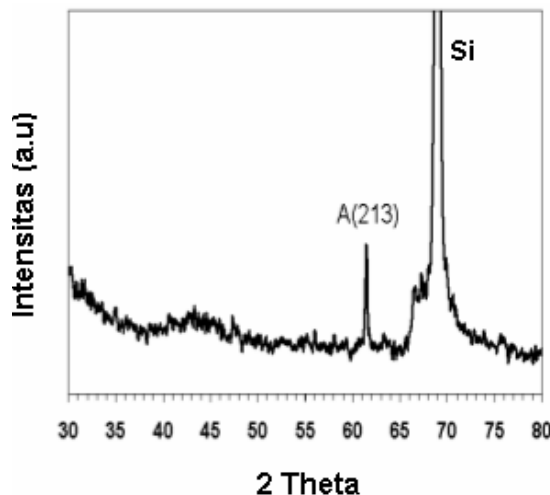
Sebagai material induk, film tipis  $\text{TiO}_2$  terlebih dahulu ditumbuhkan di atas substrat Si(100) selama 120 menit. Berbagai parameter penumbuhan digunakan, seperti variasi suhu substrat, variasi aliran gas Ar ke *bubbler*  $\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$ , variasi laju aliran gas  $\text{O}_2$  dan variasi tekanan total penumbuhan. Parameter penumbuhan optimal didapatkan sebagai berikut: suhu *bubbler*  $\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$  ( $T_{\text{b(Ti)}}$ ) =  $50^\circ\text{C}$ , suhu substrat ( $T_s$ ) =  $450^\circ\text{C}$ , tekanan *bubbler*  $\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$  ( $P_{\text{b(Ti)}}$ ) = 260 Torr, laju aliran gas argon ke *bubbler*  $\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4$  ( $\text{Ar}_{\text{(Ti)}}$ ) = 100 sccm, laju aliran gas  $\text{O}_2$  = 60 sccm dan tekanan total penumbuhan ( $P_{\text{Tot}}$ ) = 2 Torr.

Film tipis  $\text{TiO}_2$  hasil penumbuhan dengan menggunakan parameter seperti yang diterangkan di atas diuji stoikiometrinya dengan EDS. Dari hasil yang didapatkan, menunjukkan bahwa perbandingan persentase atom penyusun film adalah  $\text{Ti}:\text{O} = 1:2$ . Morfologi permukaan film ditunjukkan pada Gambar 2. Teramati bahwa bentuk permukaan butiran penyusun film hampir rata-rata memanjang di atas permukaan

substrat dengan Koalisi antar butiran sangat baik. Ukuran butiran berorde puluhan nanometer. Ukuran butiran telah mendekati homogen, dan penumbuhan butiran yang abnormal tidak terjadi. Kondisi ini menghasilkan film yang permukaannya sangat halus (*smooth*).



**Gambar 2.** Potret SEM permukaan film tipis  $\text{TiO}_2/\text{Si}(100)$ :  $\text{Tb}(\text{Ti}) = 50^\circ\text{C}$ ,  $\text{Ts} = 450^\circ\text{C}$ ,  $\text{Pb}(\text{Ti}) = 260$  Torr, laju aliran gas  $\text{Ar}(\text{Ti}) = 100$  sccm, laju aliran gas  $\text{O}_2 = 60$  sccm.

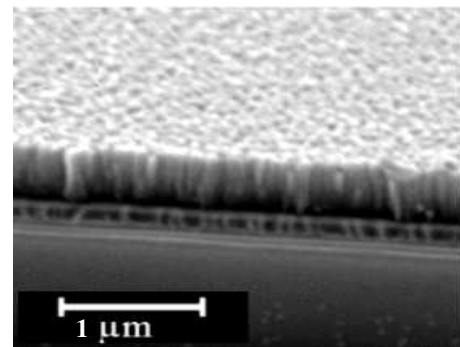


**Gambar 3.** Pola XRD film tipis  $\text{TiO}_2/\text{Si}(100)$  yang permukaannya diperlihatkan pada Gambar 2.

Struktur kristal film tipis  $\text{TiO}_2/\text{Si}(100)$  dianalisis dari hasil difraksi sinar-X. Hasil pola XRD film ditunjukkan pada Gambar 3. Suatu puncak difraksi terjadi pada sudut  $2\theta = 62,52^\circ$ . Mengacu pada referensi, puncak intensitas difraksi pada sudut tersebut dihasilkan oleh bidang kristal (213) anatase. Puncak difraksi yang terjadi adalah tunggal yang menunjukkan bahwa butiran-butiran penyusun film mayoritas memiliki domain struktur kristal yang homogen yang disusun oleh bidang tunggal (213) anatase. Hasil ini sesuai dengan potret SEM penampang lintang sebagaimana ditunjukkan pada Gambar 4, dimana bentuk butiran penyusun film secara umum sama. Film tumbuh dengan ketebalan sekitar  $0,8 \mu\text{m}$ .

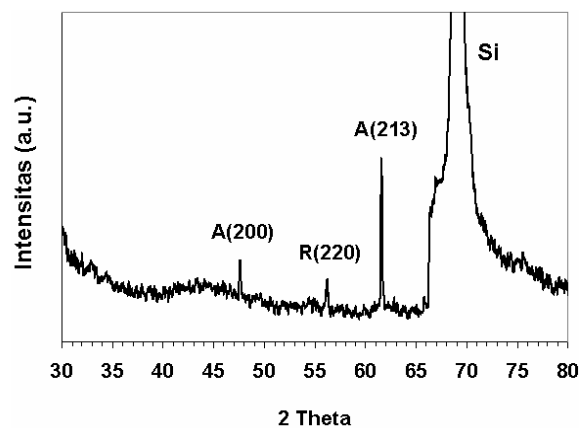
Ukuran butiran yang relatif sangat kecil, seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2 dan Gambar 4, menyebabkan intensitas difraksi bidang (213) sangat

lemah dibandingkan terhadap difraksi oleh bidang (400) substrat Si yang terjadi pada sudut  $2\theta = 69,89^\circ$ . Atom-atom penyusun film yang terdapat pada batas antar butir (*grain boundary*) yang tersusun relatif lebih acak, menghasilkan latar belakang intensitas difraksi tidak nol. Suatu fakta yang dengan jelas dapat dikonfirmasi melalui hasil potret SEM penampang lintang sebagaimana ditunjukkan pada Gambar 4.



**Gambar 4.** Potret SEM penampang lintang film tipis  $\text{TiO}_2/\text{Si}(100)$ .

Pembentukan bidang (213) anatase memiliki peluang terbesar untuk kondisi penumbuhan yang digunakan yang berkaitan dengan tekanan total penumbuhan dan besarnya suhu substrat yang diberikan. Penggunaan tekanan total yang lebih rendah dan yang lebih tinggi menghasilkan puncak fasa anatase yang beragam (*polycrystalline*) dan penggunaan suhu penumbuhan yang lebih tinggi dan yang lebih rendah dari  $450^\circ\text{C}$  masing-masing menghasilkan fasa anatase disertai fasa *rutile* dan mendekati *amorphous*. Gambar 5 memperlihatkan pola XRD film tipis  $\text{TiO}_2/\text{Si}(100)$  yang ditumbuhkan pada suhu  $550^\circ\text{C}$ .

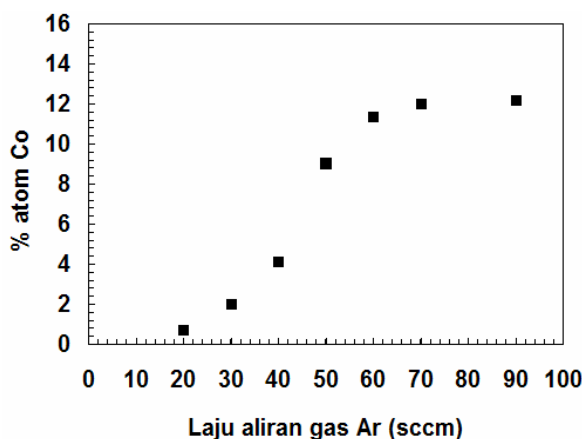


**Gambar 5.** Pola XRD film tipis  $\text{TiO}_2/\text{Si}(100)$ :  $\text{Tb}(\text{Ti}) = 50^\circ\text{C}$ ,  $\text{Ts} = 550^\circ\text{C}$ ,  $\text{Pb}(\text{Ti}) = 260$  Torr, laju aliran gas  $\text{Ar}(\text{Ti}) = 100$  sccm, laju aliran gas  $\text{O}_2 = 60$  sccm.

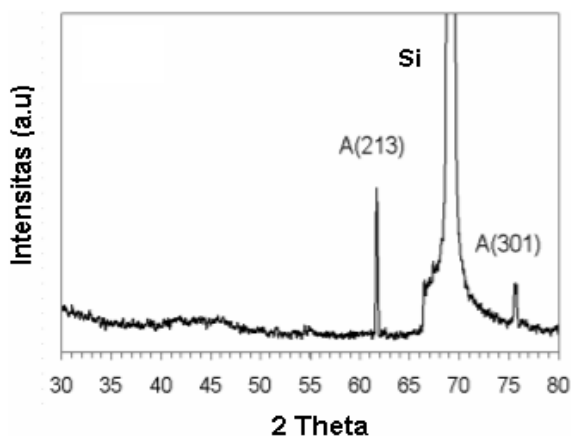
Mengacu pada parameter optimal di atas, selanjutnya penumbuhan film tipis dilakukan dengan menggunakan suatu prekursor tambahan  $\text{Co}(\text{TMHD})$ . Atom Co disubstitusi secara fraksial ke dalam matriks kisi material induk  $\text{TiO}_2$ . Untuk mengubah nilai x pada

stoikiometri  $Ti_{1-x}Co_xO_2$ , laju aliran gas pembawa (Ar) yang dialirkan ke *bubbler* prekursor Co(TMHD) divariasikan besarnya, yaitu: (a) 20 sccm, (b) 30 sccm, (c) 40 sccm, (d) 50 sccm, (e) 60 sccm, (f) 70 sccm dan (g) 90 sccm dengan suatu tekanan uap  $P_{b(Co)}$  yang sama, yaitu 260 Torr dan suhu *bubbler*  $T_{b(Co)}$  100°C.

Hasil uji EDS yang dilakukan pada film tipis yang dihasilkan menunjukkan adanya suatu variasi kandungan persen atom Co yang terdeteksi pada masing-masing film. Komposisi persen Co yang terkandung di dalam film masing-masing adalah (a) 0,73% ; (b) 2,00% ; (c) 4,10% ; (d) 9,00% ; (e) 11,35% ; (f) 12,01% dan (g) 12,19%. Hubungan antara besar laju aliran gas Ar yang dialirkan ke dalam *bubbler* Co(TMHD) dengan persen kandungan atom Co di dalam masing-masing film yang dihasilkan ditunjukkan pada Gambar 6. Teramati adanya suatu karakteristik yang unik yang ditunjukkan oleh grafik dimana ada batasan-batasan terhadap kemampuan larutnya bahan Co di dalam matrik kisi  $TiO_2$ . Kemampuan larut (*solubility*) bahan Co mulai bersaturasi pada sekitar 12%. Penambahan prekursor Co(TMHD) melalui penambahan besar laju aliran gas Ar selanjutnya tidak menambah kandungan Co secara signifikan di dalam film.



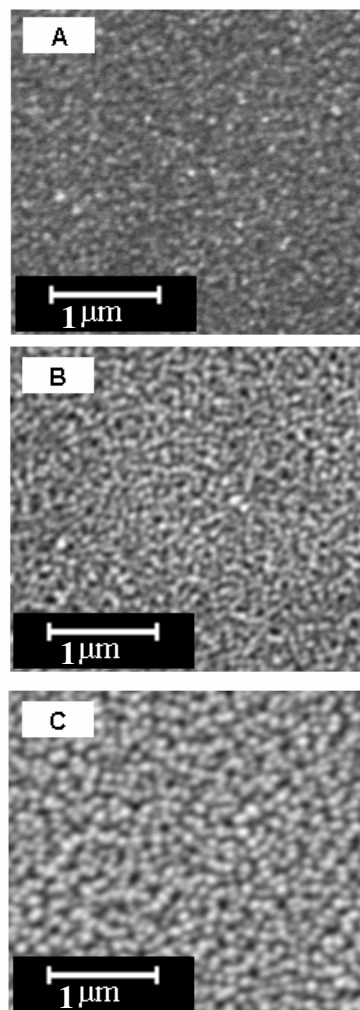
**Gambar 6.** Hubungan laju aliran gas Ar yang dialirkan ke *bubbler* Co(TMHD) terhadap perubahan nilai persen atom Co yang terkandung pada film tipis  $TiO_2:Co$ .



**Gambar 7.** Pola XRD film tipis  $TiO_2:Co$  dengan kandungan Co 11,35%.

Hasil uji XRD yang dilakukan pada film tipis yang memiliki kandungan Co yang bervariasi menunjukkan adanya suatu perubahan pada struktur kristal yang tumbuh. Pola difraksi sinar-X masing-masing film, berbeda. Bidang anatase-213 tidak muncul, digantikan oleh bidang-bidang anatase-112, anatase-211 dan anatase-301. Hal ini terjadi pada film yang mengandung Co sampai pada konsentrasi 9%. Namun bidang anatase-213 mulai hadir dengan suatu bidang tambahan anatase-301 yang tidak dominan pada film yang memiliki konsentrasi Co 11,35% (Gambar 7).

Morfologi permukaan film berubah menjadi semakin kasar dengan bertambahnya konsentrasi Co di dalamnya (Gambar 8). Ada 3 kemungkinan yang menyebabkan hal ini terjadi. Pertama, atom Co mengganti atom Ti dan menghasilkan perubahan panjang parameter kisi sehingga menyebabkan berubahnya volume sel satuan; kedua, kehadiran atom Co, baik menggantikan posisi Ti ataupun masuk secara liar (*interstitial*), memperbesar kekuatan ikatan kohesi dari atom-atom yang telah terdepositasi dengan atom-atom prekursor yang menghujani permukaan butiran sehingga mempertinggi



**Gambar 8.** Potret SEM permukaan film tipis  $TiO_2:Co$  dengan kandungan Co : (a) 2,00%, (b) 9,00% dan (c) 12,19%.

laju penumbuhan butiran. Ketiga, sebagaimana dilaporkan pada referensi 7, atom Co dapat juga membentuk kluster-kluster Co yang ukurannya mencapai 150 nm untuk konsentrasi Co di atas 8%. Jumlah dan ukuran kluster akan semakin banyak dan besar pada saat konsentrasi Co bertambah. Dari ketiga kemungkinan penyebab tersebut, yang paling dominan adalah faktor yang ke dua. Hal ini dikonfirmasi dari bertambah dalamnya lembah-lembah (*grooves*) pemisah antar butir di permukaan film (Gambar 8.c).

Film tipis, dengan berbagai kandungan Co ini, diukur efek Hall dan karakteristik transpor listriknya. Karena atom Co adalah material magnetik (feromagnetik), maka kehadiran Co di dalam matrik kisi  $\text{TiO}_2$  membuat bahan semikonduktor ini bersifat magnetik. Pada material semikonduktor magnetik, seperti  $\text{TiO}_2\text{:Co}$ , momen magnetik atom yang terdapat di dalam material, memberikan pengaruh (komponen tambahan) pada persamaan Hall karena terjadinya magnetisasi spontan ( $M_s$ ). Jadi, persamaan Hall-nya, selengkapnya ditulis menjadi [10]:

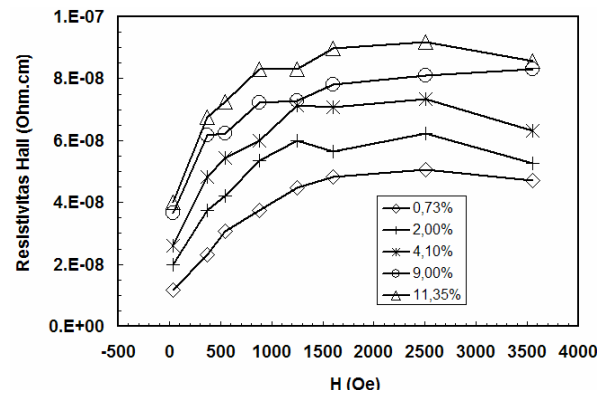
$$\rho_{Hall} = R_o \mu_o H + R_A \mu_o M_s \dots \dots \dots (1)$$

di mana :

- $\rho_{Hall}$  = resistivitas Hall,
- $R_o$  = koefisien Hall biasa (*ordinary Hall coefficient*)
- $R_A$  = koefisien Hall anomali (*anomaly Hall coefficient*) atau koefisien Hall spontan akibat terjadinya magnetisasi spontan
- $\mu_o$  = permeabilitas ruang hampa

Suku kedua persamaan 1 (resistivitas Hall spontan) secara konvensional menunjukkan suatu proses hamburan asimetri yang melibatkan suatu interaksi *spin-orbit* antara elektron konduksi dan momen magnetik atom di dalam material. Pada medan magnetik rendah, dimana saturasi magnetik belum tercapai, perilaku  $\rho_{Hall}$  didominasi oleh  $M_s$  yang bergantung pada medan luar H. Sementara, pada saat material telah termagnetisasi seluruhnya (keadaan saturasi), kebergantungan  $\rho_{Hall}$  terhadap H adalah linier dan diakibatkan oleh efek Hall biasa (suku pertama persamaan 1).

Hasil pengukuran resistivitas Hall film tipis  $\text{TiO}_2\text{-Co}$ , yang ditumbuhkan seperti yang diterangkan di atas dan yang diukur pada suhu ruang, sebagai fungsi H ditunjukkan pada Gambar 9. Tampak bahwa terjadi suatu perubahan pada nilai resistivitas Hall untuk berbagai kandungan atom Co di dalam film. Perilaku resistivitas Hall sebagai fungsi kuat medan H secara kasar terlihat terbagi dua. Pertama, resistivitas Hall pada H kecil (<1500 Oe) dan kedua, resistivitas Hall pada H besar (>1500 Oe). Pertambahan resistivitas Hall sangat tajam pada saat medan luar H lebih kecil dari 1500 Oe dan terjadi pada semua film dengan kandungan Co yang berbeda-beda. Penambahan

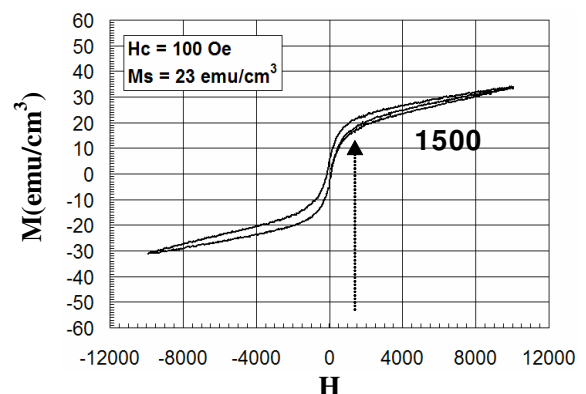


**Gambar 9.** Resistivitas Hall film tipis  $\text{TiO}_2\text{:Co}$  sebagai fungsi kuat medan magnetik (H). Persentase kandungan atom Co untuk masing-masing film adalah: (a) 0,73% ; (b) 2,00% ; (c) 4,10% ; (d) 9,00% ; dan (e) 11,35%.

kandungan atom Co menambah pula besarnya resistivitas Hall.

Penambahan resistivitas Hall yang tajam pada H kecil menunjukkan adanya kontribusi efek magnetisasi spontan ( $M_s$ ) yang terjadi pada momen magnetik atom Co yang terkandung di dalam material. Momen magnetik atom Co menghasilkan gaya Lorentz pada muatan pembawa yang kekuatannya berbanding lurus dengan laju magnetisasi. Film dengan kandungan Co yang lebih besar memiliki pertambahan resistivitas Hall yang lebih tajam.

Penambahan yang tajam pada resistivitas Hall tidak terjadi pada saat H telah melebihi 1500 Oe. Secara tidak langsung hal ini menginformasikan bahwa proses magnetisasi spontan atom-atom Co yang terdapat di dalam film telah mencapai keadaan saturasi. Hal ini sesuai dengan hasil pengukuran respon magnetisasi film sebagai fungsi medan luar H pada suhu ruang yang salah satunya ditunjukkan pada Gambar 10. Magnetisasi mulai bersaturasi pada  $H=1500$  Oe.

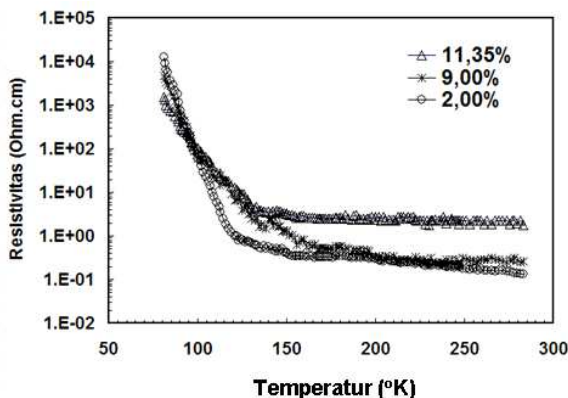


**Gambar 10.** Kurva histeresis magnetisasi film tipis  $\text{TiO}_2\text{:Co}$  dengan persentasi kandungan Co = 9,00% yang diukur pada suhu ruang.

Respon transpor listrik film sebagai fungsi suhu juga diinvestigasi. Dari hasil pengukuran, resistivitas film menunjukkan karakteristik yang semikonduktif



(Gambar 11), dimana resistivitas film bertambah dengan berkurangnya suhu.



Gambar 11. Resistivitas film tipis  $\text{TiO}_2\text{:Co}$  sebagai fungsi suhu.

Kehadiran secara fraksional elemen magnetik Co tidak menghilangkan sifat semikonduktif film  $\text{TiO}_2$ . Terjadi suatu pertambahan yang tajam pada resistivitas dibawah suhu  $120^\circ\text{C}$ . Resistivitas minimum setiap film berbeda, berawal pada suhu sekitar  $130^\circ\text{C}$ . Demikian halnya dengan kemiringan grafik di bawah suhu  $130^\circ\text{C}$ .

Sebagaimana ditunjukkan oleh Gambar 11 penambahan konsentrasi atom Co ke dalam film mempertinggi nilai resistivitas minimum. Perubahan perilaku resistivitas minimum ini tentu erat kaitannya dengan perubahan kondisi yang terbangun di dalam material akibat perubahan konsentrasi atom Co. Kehadiran atom Co dapat berperan sebagai pengganti ion  $\text{Ti}^{4+}$  melalui suatu proses substitusi. Proses substitusi Co menghasilkan ion  $\text{Co}^{2+}$ , sehingga terjadi suatu pengosongan ion  $\text{O}^{2-}$  pada kisi kristal yang menghasilkan penambahan konsentrasi muatan pembawa [10].

Pengosongan O akan membangkitkan sebaran regangan (*strain*) pada kisi kristal film. Kehadiran atom Co dapat juga bersifat liar (*interstitial*) sehingga juga menghasilkan cacat pada kristal. Kedua kondisi ini memperbesar resistivitas. Di lain pihak, atom Co dapat memperbaiki struktur kristal  $\text{TiO}_{2-x}$  sehingga dapat menurunkan resistivitas film [10].

Dari data yang didapatkan, penambahan kandungan Co dari 2% ke 9% terlihat memperbesar resistivitas minimum, namun tidak signifikan. Tapi, penambahan Co sebesar 11,35% memberikan penambahan resistivitas minimum yang berarti. Hasil ini menunjukkan bahwa kehadiran atom Co pada kristal  $\text{TiO}_2$  meningkatkan nilai resistivitas minimum. Sebagaimana disebutkan di atas, hal ini diperkirakan disebabkan oleh adanya sebaran tegangan dan atau cacat kristal yang jumlahnya semakin besar dengan bertambahnya kandungan Co.

## KESIMPULAN

Film tipis  $\text{TiO}_2\text{:Co}$  telah berhasil ditumbuhkan dengan teknik MOCVD dengan menggunakan prekursor *titanium (IV) isopropoxide*  $[\text{Ti}(\text{OCH}(\text{CH}_3)_2)_4]$  99,99% dan serbuk *tris* (2,2,6,6-tetramethyl-3,5-heptanedionato) *cobalt (III)*  $[\text{Co}(\text{TMHD})_3]$  99%. Struktur kristal film sangat dipengaruhi oleh kehadiran dan konsentrasi atom Co. Kemampuan larut (*solubility*) atom Co ke dalam matriks kisi  $\text{TiO}_2$  teramati mulai bersaturasi pada kandungan Co sekitar 12%. Ukuran butiran dan kekasaran permukaan film juga dipengaruhi oleh besarnya kandungan Co di dalamnya, yang mana besar dan kekasarannya bertambah dengan bertambahnya kandungan Co. Sifat feromagnetik film tipis  $\text{TiO}_2\text{:Co}$  teramati pada suhu ruang. Kehadiran elemen magnetik Co tidak menghilangkan karakteristik semikonduktif  $\text{TiO}_2$ . Namun, resistansi film bertambah dengan bertambahnya kandungan Co. Film tipis  $\text{TiO}_2\text{:Co}$  telah berhasil ditumbuhkan secara merata dan homogen di atas substrat Si(100) dengan lebar sekitar  $(3 \times 3) \text{ cm}^2$ .

## DAFTARACUAN

- [1]. T. DIETL and H. OHNO, Ferromagnetic III-V and II-VI semiconductors, *MRS Bulletin*, **28** (2003) 714
- [2]. R. FLEDERLING, M. KEIM, G. REUSCHER, W.OSSAU, G. SCHMIDT, A. WAAG and L.W. MOLENKAMP, Injection and detection of a spin-polarized current in a light-emitting diode, *Nature* **402** (1999) 788
- [3]. S.A. CHAMBERS and Y.K. YOO, New materials for spintronics, *MRS Bulletin*, **28** (2003) 706
- [4]. Y. OHNO, D.K. YOUNG, B. BESCHOTEN, F. MATSUKURA, H. OHNO & D.D. AWSCHALOM, Electrical spin injection in a ferromagnetic semiconductor heterostructure, *Nature* **402** (1999) 790
- [5]. S.J. PEARTON, C.R. ABERNATHY, M.E. OVERBERG, G.T. THALER, D.P. NORTON, N. THEODOROPOULOU, A.F. HEBARD, Y.D. PARK, F. REN, J. KIM and L.A. BOATNER, *J. Appl. Phys. Lett.*, **93** (1) (2003)
- [6]. N.H. HONG, J. SAKAI, W. PRELLIER and A. HASSINI, *Appl. Phys. Lett.*, **79** (2003), 3129
- [7]. Y. MATSUMOTO, M. MURAKAMI, T. SHONO, T. HASEGAWA, T. FUKUMURA, M. KAWASAKI, P. AHMET, T. CHIKYOW, S. KOSHIHARA and H. KOINUMA, *Room-temperature ferromagnetism in transparent transition metal-doped titanium dioxide*, *Science* **291** (2001) 854
- [8]. S.A. CHAMBERS, A Potential Role in Spintronics, *Materials Today*, **34** (2002)

- [9]. J.S. YANG, D.H. KIM, S.D. BU, T.W. NOH, S.H. PHARK, Z.G. KHIM, I.W. LYO and S.J. OH, Surface structures of a Co-doped anatase TiO<sub>2</sub>(001) film investigated by scanning tunneling microscopy, *Appl. Phys. Lett.* **82** (2003) 3080
- [10]. J.S. HIGGINS, S.R. SHINDE, S.B. OGALE, T. VENKATESAN and R.L. GREENE, Hall effect in cobalt-doped TiO<sub>2-d</sub>, *Phys. Rev. B*, **69** (2004) 073201-1